

日本国特許庁  
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日 2002年 8月14日  
Date of Application:

出願番号 特願2002-236447  
Application Number:

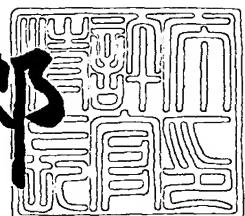
[ST. 10/C] : [JP2002-236447]

出願人 東洋エンジニアリング株式会社  
Applicant(s):

2003年 7月 8日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

太田信一郎



出証番号 出証特2003-3053880

【書類名】 特許願

【整理番号】 P021101

【提出日】 平成14年 8月14日

【あて先】 特許庁長官 殿

【国際特許分類】 C01B 3/36

【発明者】

【住所又は居所】 千葉県習志野市茜浜2丁目8番1号 東洋エンジニアリング株式会社内

【氏名】 木内 龍彦

【発明者】

【住所又は居所】 千葉県習志野市茜浜2丁目8番1号 東洋エンジニアリング株式会社内

【氏名】 島垣 誠

【発明者】

【住所又は居所】 千葉県習志野市茜浜2丁目8番1号 東洋エンジニアリング株式会社内

【氏名】 廣谷 邦雄

【発明者】

【住所又は居所】 千葉県習志野市茜浜2丁目8番1号 東洋エンジニアリング株式会社内

【氏名】 家合 克典

【特許出願人】

【識別番号】 000222174

【氏名又は名称】 東洋エンジニアリング株式会社

【代理人】

【識別番号】 100088328

【弁理士】

【氏名又は名称】 金田 輝之

【電話番号】 03-3585-1882

## 【選任した代理人】

【識別番号】 100106297

## 【弁理士】

【氏名又は名称】 伊藤 克博

## 【選任した代理人】

【識別番号】 100106138

## 【弁理士】

【氏名又は名称】 石橋 政幸

## 【手数料の表示】

【予納台帳番号】 089681

【納付金額】 21,000円

## 【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 改質器

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 含炭素原料を部分酸化した後に水蒸気改質して合成ガスを得るための、密閉可能な容器と、該容器内に酸化剤を供給するための酸化剤供給管と、該容器内に含炭素原料を供給する含炭素原料供給管とを備える改質器において、

酸化剤供給管の中心軸と含炭素原料供給管の中心軸とが、該酸化剤供給管出口より酸化剤流れ方向下流かつ該含炭素原料供給管出口より含炭素原料流れ方向下流において交わることを特徴とする改質器。

【請求項 2】 前記酸化剤供給管の中心軸と含炭素原料供給管の中心軸とが交わる角度が 80 ~ 100 度である請求項 1 記載の改質器。

【請求項 3】 酸化剤供給管出口の等価水力直径を D1 (m) 、  
含炭素原料供給管出口の等価水力直径を D2 (m) 、  
酸化剤供給管出口における酸化剤噴流の平均流速を V1 (m/秒) 、  
含炭素原料供給管出口における含炭素原料噴流の平均流速を V2 (m/秒) 、  
酸化剤供給管出口端から、前記酸化剤供給管の中心軸と含炭素原料供給管の中心軸とが交わる交点までの距離を L1 (m) としたとき、次の関係が成り立つ請求項 1 または 2 記載の改質器。

【数 1】

$$40 \leq V1 \leq 150,$$

$$0.2V1 \leq V2 \leq 0.8V1, かつ$$

$$\min (0.5D2, 7.0D1) \leq L1 \leq \max (0.5D2, 7.0D1)$$

【請求項 4】 酸化剤供給管出口の断面形状が、円形、橢円形、多角形、多角星形または花びら形である請求項 1 ~ 3 のいずれか一項記載の改質器。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、天然ガス、メタン、エタン、プロパン、ブタン、ナフサ等の含炭素

原料を、空気、酸素富化空気または酸素を用いて部分酸化反応させ、さらに水蒸気改質反応により、水素および一酸化炭素を主成分とする合成ガスを製造する改質器に関する。

### 【0002】

#### 【従来の技術】

天然ガス、ナフサ等の含炭素原料から水素製造、メタノール製造あるいはアンモニア製造等の合成ガスの製造方法としては、2種類の反応器を使用する方法が良く知られている。

### 【0003】

天然ガスを原料とするアンモニア製造においては、まず第1の反応器に含炭素原料およびスチームを原料として、改質炉の中に多数の反応管を設置し、反応管の外部より熱を供給する改質炉形式の反応器により、下記に示す水蒸気改質反応およびシフト反応を利用して水素を主成分とする第1の合成ガスの製造が行われる。この第1の合成ガスは、水素を主成分とし、一酸化炭素、二酸化炭素、メタン、スチームから構成される。例えば、反応管は内径約100mm、長さ約15mの耐熱鋼製であり、反応管内部にはニッケル系触媒が充填されており、反応条件としては、圧力は2～4MPa、温度が700～900℃である。

### 【0004】

続いて、この第1の合成ガスは、酸化剤とともに図4に示される反応器に供給され、下記に示す部分酸化反応を利用し、目的とする合成ガスが製造される。例えば、この反応器には、第1の反応器と同じように、ニッケル系触媒が充填されており、反応条件としては、圧力が2～4MPa、温度が900～1、100℃である。

### 【0005】

酸化剤は、空気、酸素あるいは酸素富化空気が使われており、経済性を考慮して選ばれる。

### 【0006】

この第2の反応器では2段階で反応が起こると考えられている。まず、第1段階で、第1の反応器よりの第1の合成ガスと酸化剤との部分酸化反応を利用して

、高温ガスを発生させ、更に第2段階において、生成した部分酸化反応ガスを触媒層に供給して合成ガスを製造する。

### 【0007】

更に詳しく説明すると、第2の反応器の第1段階では、発熱反応である部分酸化反応が起こる。例えば、第1の合成ガスの成分であるメタンを例にとると、代表的な部分酸化反応は次式で表される。

### 【0008】

#### 【化1】

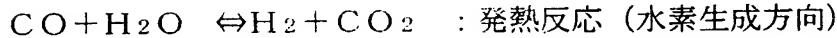


### 【0009】

第2段階では、上記部分酸化反応の領域より下流に配置された触媒層において、次に示す水蒸気改質反応およびシフト反応が生じて合成ガスが生成される。

### 【0010】

#### 【化2】



### 【0011】

上記二つの反応では、水蒸気改質反応が支配的なため、全体としては吸熱反応となる。

### 【0012】

第2段階の吸熱反応に必要な熱量は第1段階の部分酸化反応熱で賄うため、触媒層全体に第1段階で生成した高温の部分酸化反応ガスを均一に供給することが望ましい。

### 【0013】

工業的に使用される第2の反応器（以下、「改質器」という。）を図4に示す。この装置は、Ammonia Plant Safety & Related Facilities, Volume 34, page 24～に示されるものである。

## 【0014】

図4に示すように、改質器は、密閉可能な容器4に、酸化剤供給管21、含炭素原料供給管11、バーナノズル6、レンガ3、触媒層5、アルミナボール7、サポートレンガ8が設けられてなる。酸化剤2は円筒状の酸化剤供給管21から供給され、含炭素原料1は、酸化剤供給管21の横方向もしくは軸方向に設置される含炭素原料供給管11から酸化剤供給管21の周辺に供給される。供給された含炭素原料1は、酸化剤供給管21に沿って下流方向に流れ、バーナノズル近傍で酸化剤と合流し、部分酸化反応を起こし、高温部分を形成する。この高温の部分酸化反応ガス31は、耐熱性のあるレンガ3が設置された触媒層5に供給され、更に水蒸気改質反応およびシフト反応を起こし、アルミナボール7、サポートレンガ8をとおり、合成ガス排出口9から合成ガス32が得られる。

## 【0015】

この高温部分が形成されるバーナノズル6に関する構造が、特開平5-256420号公報、特開平6-34112号公報および特開2000-186806号公報に開示されている。

## 【0016】

特開平5-256420号公報には、燃料ガス噴出機が燃料ガス通路の流出端と接続され、この燃料噴出機がバーナー管と噴出機の共通の軸の周りにU型の断面部の内部表面を有し、酸化物噴出機が酸化物供給管の流出端に接続され、酸化物噴出機が燃料ガス噴出機と同軸状に隔てられたU型の断面部の表面を有し、各噴出室がU型の輪郭を有し、共通の軸の周りに円形の流出端を備え、円筒径の突出体が酸化噴出室内に同軸状に配設され、この突出体がドーム状の上流端とテーパ状の下流端を有し、渦巻機がその上流端とその下流端の間の突出体に配設され、この渦巻機が酸化物噴出室の表面に延びている安定した渦巻ブレードを有した構造が開示されている。

## 【0017】

また、特開平6-34112号公報には、金属製供給管と、供給管と連通する金属製後方部片とそれに隣接するセラミック製前方部片とを具備するノズルと、ノズルの周囲に保護気体を提供する手段とを備える複合ランスを燃焼帯域の壁内

にありそして燃焼帯域と連通する開通口を有する空洞に引っ込めて配置した複合ランス気体噴射装置が開示されている。

#### 【0018】

特開2000-186806号公報には、腐食性雰囲気に曝されるバーナにより炭化水素燃料を燃焼させる際、このバーナ表面の周囲の腐食性雰囲気を希釈もしくは置き換えるに十分な量の保護雰囲気をバーナボディの外面および全面に沿って流し、バーナボディを保護する方法が開示されている。

#### 【0019】

これらの技術では、バーナノズルの先端あるいは近傍に、混合促進、均一混合、逆流防止、噴射方向調整、冷却などを目的とした部品が装着され、複雑な形状を呈している。また、これらの技術では、含炭素原料の部分酸化反応を生じるまでの供給方向が酸化剤供給管に沿って平行であるために、バーナノズル出口での高温の部分酸化反応領域が下方に向かって大きく延びる構造となっている。

#### 【0020】

しかしながら、複雑な形状をしたバーナノズルは、バーナノズル近傍の高温の部分酸化反応ガスによりノズルが熱損傷および高温腐食損傷を起こしやすく、長期間の使用に耐えることが難しい。さらに、バーナノズル直下の局所的な高温の部分酸化反応領域が下流方向に延びると、触媒を損傷し、また触媒層表面に到達するガス温度は不均一となり、触媒層内部で起きる水蒸気改質反応及びシフト反応の反応効率が低下する。

#### 【0021】

##### 【発明が解決しようとする課題】

本発明の目的は、簡単な構造のバーナを用いつつも、バーナノズル近傍において部分酸化反応による高温領域が生成することを防止し、部分酸化反応を安定かつ均一に進行させ、バーナや触媒の熱損傷や高温腐食損傷を防ぐことのできる、長寿命な改質器を提供することである。さらには、触媒層内で起きる反応の反応効率を高く維持できる改質器を提供することも目的とする。

#### 【0022】

##### 【課題を解決するための手段】

本発明者らは、酸化剤と含炭素原料の混合を特定の仕方で行うことにより、バーナノズル近傍で部分酸化反応による高温領域が発生することを防止でき、安定した均一な部分酸化反応を起こすことができるを見出し、本発明を完成させるに至った。

#### 【0023】

本発明により、含炭素原料を部分酸化した後に水蒸気改質して合成ガスを得るための、密閉可能な容器と、該容器内に酸化剤を供給するための酸化剤供給管と、該容器内に含炭素原料を供給する含炭素原料供給管とを備える改質器において、

酸化剤供給管の中心軸と含炭素原料供給管の中心軸とが、該酸化剤供給管の出口より酸化剤流れ方向下流かつ該含炭素原料供給管の出口より含炭素原料流れ方向下流において交わることを特徴とする改質器が提供される。

#### 【0024】

この改質器において、酸化剤供給管の中心軸と含炭素原料供給管の中心軸とが交わる角度が80～100度であることが好ましい。

#### 【0025】

また、酸化剤供給管出口の等価水力直径をD1(m)、  
含炭素原料供給管出口の等価水力直径をD2(m)、  
酸化剤供給管出口における酸化剤噴流の平均流速をV1(m/秒)、  
含炭素原料供給管出口における含炭素原料噴流の平均流速をV2(m/秒)、  
酸化剤供給管出口端から、前記酸化剤供給管の中心軸と含炭素原料供給管の中心軸とが交わる交点までの距離をL1(m)としたとき、次の関係が成り立つことが好ましい。

#### 【0026】

##### 【数2】

$$40 \leq V1 \leq 150,$$

$$0.2V1 \leq V2 \leq 0.8V1, \text{かつ}$$

$$\min(0.5D2, 7.0D1) \leq L1 \leq \max(0.5D2, 7.0D1)$$

#### 【0027】

また、酸化剤供給管出口の断面形状が、円形、楕円形、多角形、多角星形または花びら形であることが好ましい。

### 【0028】

ここで、 $\min(0.5D_2, 7.0D_1)$  は、 $0.5D_2$  および  $7.0D_1$  のうちの最小値を与える関数、 $\max(0.5D_2, 7.0D_1)$  は  $0.5D_2$  および  $7.0D_1$  のうちの最大値を与える関数である。また  $V_1$ 、 $V_2$  は、実際の温度、圧力における流速である。

### 【0029】

#### 【発明の実施の形態】

触媒としては、耐熱性があり、水蒸気改質反応およびシフト反応に活性のあるものであれば使用することができ、例えば市販のニッケル系触媒を使用することができる。反応条件は、好ましくは圧力が  $2 \sim 6 \text{ MPa}$ 、温度が  $800 \sim 1100^\circ\text{C}$  であり、温度・圧力条件は経済性を考慮して選ばれる。

### 【0030】

また、酸化剤は、酸素、空気、酸素富化空気の中から、製造する製品に従い、経済性を考慮して選ばれる。例えば、メタノール製造用および水素製造用の合成ガスの製造には、窒素をできるだけ含まないほうが経済的であるので、空気分離装置よりの酸素を使うことが好ましい。アンモニア製造用の合成ガスの製造には、アンモニア合成のための原料となる窒素がふくまれていいというほうが望ましいので、空気あるいは酸素富化空気を使うことが好ましい。空気の供給量については、適宜、アンモニア製造の経済性を考慮して決定される。また、酸素富化空気中の酸素量および供給量は、適宜アンモニア製造の経済性を考慮して決定される。

### 【0031】

含炭素原料としては、水蒸気改質反応によって水素を生成しうる、炭素原子を有する化合物を一種または2種以上混合して用いることができる。含炭素原料には、他の成分が含まれることもできる。含炭素原料の例としては、天然ガス、メタン、エタン、プロパン、ブタン、ナフサを挙げることができる。また、天然ガス等の含炭素原料に、水素、一酸化炭素、二酸化炭素、スチームが含まれていても良い。例えば、天然ガス等の含炭素原料が部分的に改質された部分改質ガスを

含炭素原料として用いることもできる。実用上は、カーボン析出防止等の観点から含炭素原料がスチームを含むことが好ましく、このスチームが水蒸気改質反応用のスチームとして利用される。

### 【0032】

以下、図面を用いて本発明の一形態について説明するが、本発明はこの形態に限られるものではない。

### 【0033】

図1は本発明の改質器の一形態の全体を示す模式図である。改質器は、密閉可能な容器4に、酸化剤2を供給するための酸化剤供給管21、改質器内に含炭素原料1を供給するための含炭素原料供給管11、水蒸気改質反応及びシフト反応を促進するための触媒層5を収容する領域、触媒層の下流に配された触媒層を支持し改質器の圧力損失を均一化するためのアルミナボール層7を収容する領域、触媒層やアルミナボール等を支えるサポートレンガ8、および合成ガス32を排出するための排出口9が設けられてなる。

### 【0034】

ここでは酸化剤供給管および含炭素原料供給管は円筒状の管としてある。また改質器は、酸化剤供給管および含炭素原料供給管を備え、酸化剤と含炭素原料とを混合し部分酸化反応させるための部分酸化反応部（ここでは内径D3の円筒部。以下、場合により「改質器上部」という。）；部分酸化反応したガスである部分酸化反応ガス31の流れを拡げるための、内径がD3からD4に連続的に拡大するコーン部；触媒層およびアルミナボール層を収容するための領域、サポートレンガならびに排出口を備え、部分酸化反応ガスから水蒸気改質反応およびシフト反応により合成ガスを得るための水蒸気改質部（ここでは内径D4の円筒部。以下、場合により「改質器下部」という。）を有する。

### 【0035】

図2は、改質器上部の酸化剤と含炭素燃料が混合する部分を拡大した拡大図である。酸化剤供給管21の中心軸22と、含炭素原料供給管11の中心軸12とは交点40において交わる。交点40は酸化剤供給管21の出口より酸化剤の流れ方向に対して下流側に、かつ、含炭素原料供給管11の出口より含炭素原料の

流れ方向に対して下流側に位置する。

【0036】

中心軸22と中心軸12が交わる角度θは80～100度が好ましく、より好ましくは90度である。

【0037】

このようにして、酸化剤の噴流と含炭素原料の噴流を交わらせることにより、二つの噴流が形成するポテンシャルコア表面の拡散混合を有効に利用し、部分酸化反応を均一に促進することができ、もって酸化剤噴流の成長を防いで部分酸化による高温領域が下方に延びて触媒層中心付近に集中することを防止できる。

【0038】

ここで、酸化剤供給管出口の等価水力直径をD1(m)、含炭素原料供給管出口の等価水力直径をD2(m)、酸化剤供給管出口における酸化剤噴流の平均流速をV1(m/秒)、含炭素原料供給管出口における含炭素原料噴流の平均流速をV2(m/秒)、酸化剤供給管出口端から、前記酸化剤供給管の中心軸と含炭素原料供給管の中心軸とが交わる交点までの距離をL1(m)としたとき、

【0039】

【数3】

$$40 \leq V_1 \leq 150$$

$$0.2V_1 \leq V_2 \leq 0.8V_1, \text{かつ}$$

$$\min(0.5D_2, 7.0D_1) \leq L_1 \leq \max(0.5D_2, 7.0D_1)$$

【0040】

であることが好ましく、

【0041】

【数4】

$$60 \leq V_1 \leq 90,$$

$$0.4V_1 \leq V_2 \leq 0.6V_1, \text{かつ}$$

$$\min(0.6D_2, 5.0D_1) \leq L_1 \leq \max(0.6D_2, 5.0D_1)$$

【0042】

であることがより好ましい。

#### 【0043】

酸化剤噴流のポテンシャルコアが成長して長くなることを防ぎ、部分酸化反応の高温領域が噴流下流方向に細長く成長して高温ガスが触媒層中心付近に集中することを防止し、触媒の溶融損傷を回避する観点から、酸化剤の平均流速V1は好ましくは150m/秒以下、より好ましくは90m/秒以下である。

#### 【0044】

高温の部分酸化反応領域が酸化剤供給管出口近傍に集中することを防ぎ、酸化剤供給管の溶融損傷を回避する観点から、また部分酸化反応の高温領域が含炭素原料供給管と対向する側の改質器炉壁に偏ることを防ぎ、炉壁損傷を回避する観点から、酸化剤の平均流速V1は好ましくは40m/秒以上、より好ましくは60m/秒以上である。このように、酸化剤供給管先端近傍に高温の部分酸化反応領域が形成されることを回避することによって、熱損傷を防ぐためにノズル先端に設けられる水冷機構等を不要とすることができる。

#### 【0045】

含炭素原料供給管と対向する側の改質器炉壁に高温ガスが偏って流れることを防ぎ、炉壁損傷を回避する観点から、含炭素原料の平均流速V2は好ましくは0.8V1以下、より好ましくは0.6V1以下である。

#### 【0046】

酸化剤噴流のポテンシャルコアが成長して長くなることを防ぎ、高温ガスの触媒層中心付近への集中を防止し、触媒の溶融損傷を回避する観点から、含炭素原料の平均流速V2は好ましくは0.2V1以上、より好ましくは0.4V1以上である。

#### 【0047】

L1は好ましくは0.5D2以上 ( $0.5D2 \leq 7.0D1$  の場合) または7.0D1以上 ( $0.5D2 > 7.0D1$  の場合) 、より好ましくは0.6D2以上 ( $0.6D2 \leq 5.0D1$  の場合) または5.0D1以上 ( $0.6D2 > 5.0D1$  の場合) である。

#### 【0048】

$L_1$  は好ましくは  $7.0 D_1$  以下 ( $0.5 D_2 \leq 7.0 D_1$  の場合) または  $0.5 D_2$  以下 ( $0.5 D_2 > 7.0 D_1$  の場合) 、より好ましくは  $5.0 D_1$  以下 ( $0.6 D_2 \leq 5.0 D_1$  の場合) または  $0.6 D_2$  以下 ( $0.6 D_2 > 5.0 D_1$  の場合) である。

#### 【0049】

酸化剤供給管の出口の断面形状は、図3 (a) に示す円形に限られるものではなく、任意の形状とすることができます。例えば同図 (b) ~ (e) に示すような橢円形、多角形、多角星形または花びら形でもよい。

#### 【0050】

酸化剤と含炭素原料の混合を促進する観点からは、噴流のポテンシャルコア表面積を広くすることのできる多角形、多角星形または花びら形の断面が好ましい。

#### 【0051】

なお、任意断面形状についての  $V_1$  および  $V_2$  は、それぞれ等価水力直径で評価した酸化剤供給管および含炭素原料供給管出口流速である。ここに等価水力直径 ( $d$ ) は、

$$d = 4 m$$

$$m = A / P$$

$A$  : 断面積、 $P$  : 濡れ縁長さ

である。

#### 【0052】

改質器の上部の内径  $D_3$  および部分酸化反応領域長さ  $L_2$  は、処理する酸化剤および含炭素原料の量により経済性等を考慮して適宜決定する。この部分酸化反応領域長さ  $L_2$  は、 $D_3$  と関連し部分酸化反応領域の下端面 (図1中、内径  $D_3$  の円筒部の最も下流側における容器断面) において部分酸化反応ガスの温度がほぼ均一となる長さから選ばれる。更に、この内径  $D_3$  は触媒層の内径  $D_4$  およびコーン部長さ  $L_3$  と関連し、生成した部分酸化反応ガスがほぼ均一に触媒層に供給されるように部分酸化反応を含む三次元流れ解析 (CFD解析) 手法などを用いて  $D_3$ 、 $D_4$ 、 $L_2$  および  $L_3$  を決定することができる。

## 【0053】

## 【実施例】

## 【実施例1】

図1に示す構成の改質器（酸化剤供給管の中心軸と含炭素原料供給管の中心軸のなす角度は90度）を用い、合成ガス2,000,000NM<sup>3</sup>/hを製造した。ここで単位「NM<sup>3</sup>」は、0℃、0.101MPaにおけるm<sup>3</sup>（立方メートル）を意味する。

## 【0054】

含炭素原料は、スチーム、水素、一酸化炭素、二酸化炭素、メタンを主成分とし、圧力2MPa、温度800℃で、1,500,000NM<sup>3</sup>/h供給し、酸化剤としては、酸素分離装置からの酸素を、圧力2MPa、温度150℃で、79,000NM<sup>3</sup>/h供給した。それぞれの組成を表1および表2に示す。

## 【0055】

## 【表1】

表1 含炭素原料の条件

成分	実施例1	比較例1
	モル%	モル%
スチーム	34.0	34.0
水素	44.4	44.4
一酸化炭素	7.5	7.5
二酸化炭素	6.1	6.1
メタン	7.9	7.9
窒素	0.1	0.1
アルゴン	0.0	0.0
流量 (NM <sup>3</sup> /h)	1,500,000	210,000

## 【0056】

## 【表2】

表2 酸化剤の条件

	実施例1	比較例1
成分	モル%	モル%
窒素	0.4	0.4
アルゴン	1.6	1.6
酸素	95.0	95.0
スチーム	3.0	3.0
流量 (NM <sup>3</sup> /h)	79,000	11,000

## 【0057】

酸化剤供給管の内径D1を16.5mm、含炭素原料供給管の内径D2を1.5mm、改質器上部の内径D3を2.500mm、改質器下部の内径D4を5.000mm、含炭素原料混合位置L1を850mm、部分酸化反応領域長さL2(交点40からコーン部までの流れ方向距離)を7,000mmとした。また、酸化剤供給流速V1は80m/秒とし、含炭素原料の供給流速V2は43m/秒とした。なお、酸化剤供給管および含炭素原料供給管の断面形状は円形とした。

## 【0058】

改質器上部に等間隔に設置された熱電対温度計の測定結果から、この条件下で部分酸化反応により生成される高温領域の最高点は、酸化剤供給管先端より約2,000mm下方であり、酸化剤供給管出口近傍の温度は、供給した酸化剤ガス温度とほぼ同じであった。また、上記熱電対温度計により温度分布の経時変化を観察したところ、上記条件下での高温の部分酸化反応領域が安定的に形成されていることが分かった。さらに、触媒層の上面に設置された複数の熱電対温度計により、触媒層上面に供給される部分酸化反応ガスの温度分布を観察したところ、その温度分布は±4%以内であった。

## 【0059】

## 〔比較例1〕

図4に示す構造の従来技術による改質器を用い、合成ガス280, 000 NM<sup>3</sup>/hを製造した。本例では、本発明の改質器とは異なり、酸化剤供給管と含炭素原料供給管の中心軸が、酸化剤供給管出口より酸化剤流れ方向上流において交わっており、それぞれの流れは平行とされたうえで部分酸化反応部に供給されている。

## 【0060】

含炭素原料は、スチーム、水素、一酸化炭素、二酸化炭素、メタンを主成分とし、圧力2MPa、温度800°Cで、210, 000 NM<sup>3</sup>/h供給し、酸化剤としては、酸素分離装置からの酸素を、圧力2MPa、温度150°Cで、11, 000 NM<sup>3</sup>/h供給した。それぞれの組成を表1および表2に示す。

## 【0061】

酸化剤供給管の内径D1を130mm、改質器上部の内径D3を1, 000mm、改質器下部の内径D4を5, 000mm、含炭素原料混合位置L1を3, 000mm、部分酸化反応領域コーン部の長さL3を2, 000mmとした。酸化剤供給管出口の酸化剤平均流速は18m/秒、含炭素原料供給管出口の含炭素原料平均流速は12m/秒とした。

## 【0062】

この条件下で、部分酸化反応により生成される高温領域は、酸化剤供給管ノズル先端より約100mm下方であり、酸化剤供給管バーナーノズル近傍で高温領域が生じていた。また、触媒層上面に設置された複数の熱電対温度計による測定結果から、触媒層上面の温度分布は±10%の範囲にばらついており、触媒層への均一な高温ガス供給がなされていなかった。

## 【0063】

## 【発明の効果】

比較例1に示すように、従来型の改質器では、高温の部分酸化領域が酸化剤供給管バーナーノズル直下で形成され、バーナーノズルが高温に曝され、熱損傷や熱腐食損傷を起こす可能性がある。

## 【0064】

一方実施例 1 から分かるように、本発明の改質器では、高温の部分酸化反応領域は酸化剤供給管出口の下流 2, 000 mm 付近に形成され、高温の部分酸化反応領域が酸化剤供給管出口直下で形成されないため、酸化剤供給管は高温になることがなく、その熱損傷、熱腐食損傷を防止することができる。

【0065】

さらに、実施例 1 からわかるように、本発明によって噴流の強い拡散混合による安定した部分酸化反応を実現することができ、触媒層入り口表面の温度がほぼ均一になり、触媒層内部の反応の反応効率が良好に保たれる。

【図面の簡単な説明】

【図 1】

本発明の改質器の一形態を示す模式図である。

【図 2】

図 1 の改質器の上部の拡大図である。

【図 3】

本発明に適用できる酸化剤供給管出口の断面形状を示す模式図である。

【図 4】

従来の改質器を示す模式図である。

【符号の説明】

- 1 : 含炭素原料
- 2 : 酸化剤
- 3 : レンガ
- 4 : 容器
- 5 : 触媒層
- 6 : バーナノズル
- 7 : アルミナボール
- 8 : サポートレンガ
- 9 : 排出口
- 11 : 含炭素原料供給管
- 12 : 含炭素原料供給管の中心軸

2 1：酸化剤供給管

2 2：酸化剤供給管の中心軸

3 1：部分酸化反応ガス

3 2：合成ガス

4 0：酸化剤供給管の中心軸と含炭素原料供給管の中心軸との交点

L 1：含炭素原料混合位置

L 2：部分酸化反応領域長さ

L 3：部分酸化反応領域コーン部長さ

D 1：酸化剤供給管内径

D 2：含炭素原料供給管内径

D 3：改質器上部内径

D 4：改質器下部内径

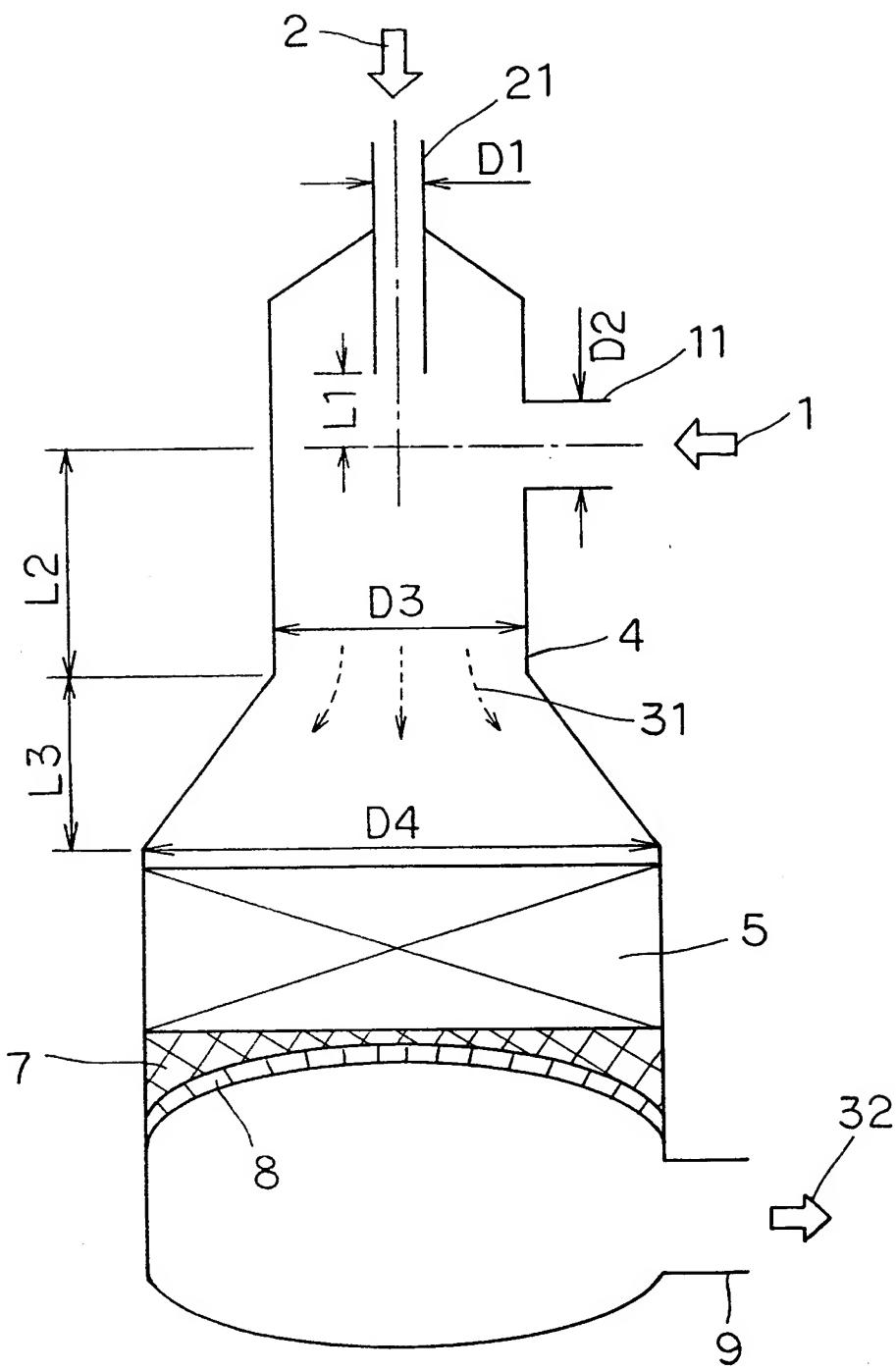
V 1：酸化剤平均供給速度

V 2：含炭素原料平均供給速度

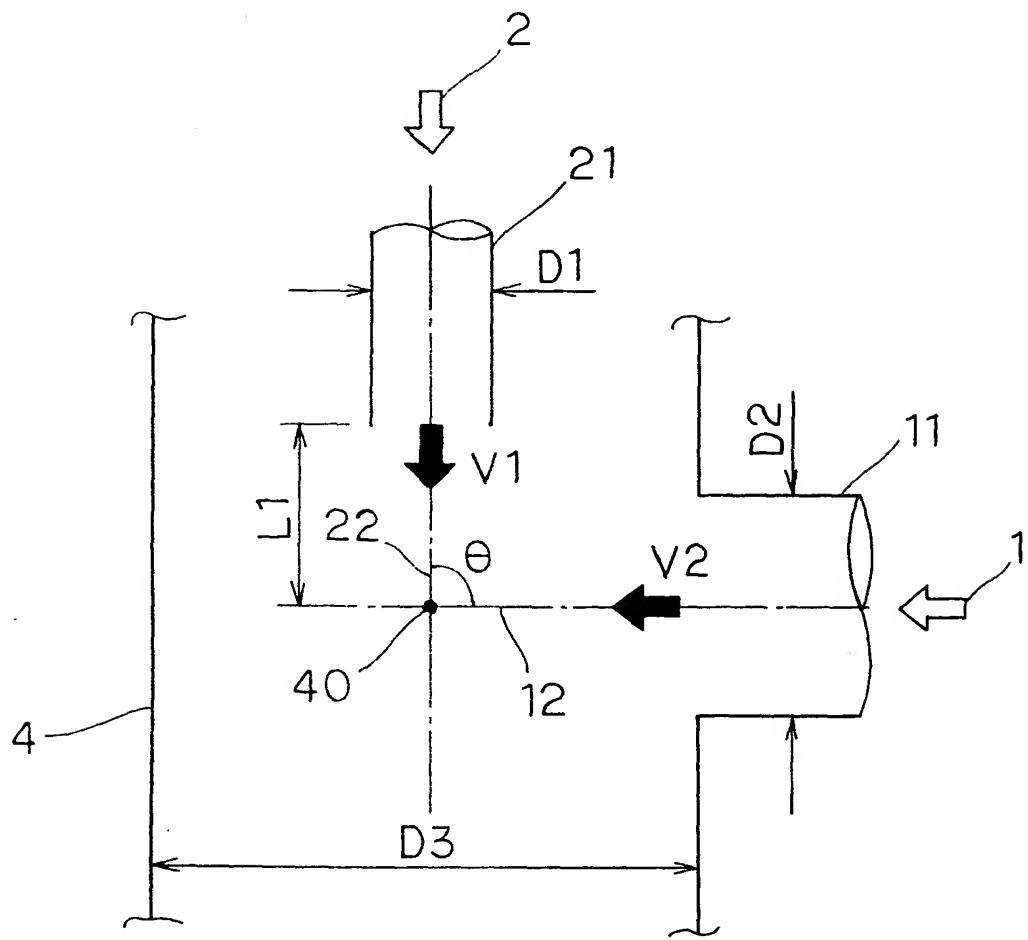
【書類名】

図面

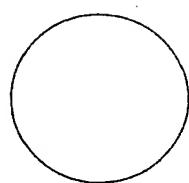
【図1】



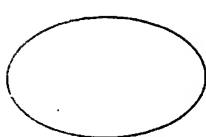
【図2】



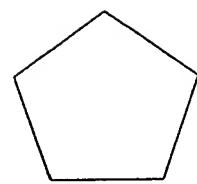
【図3】



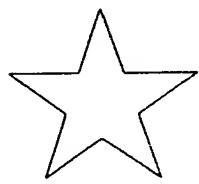
(a)



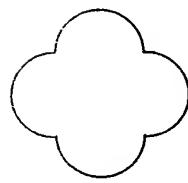
(b)



(c)

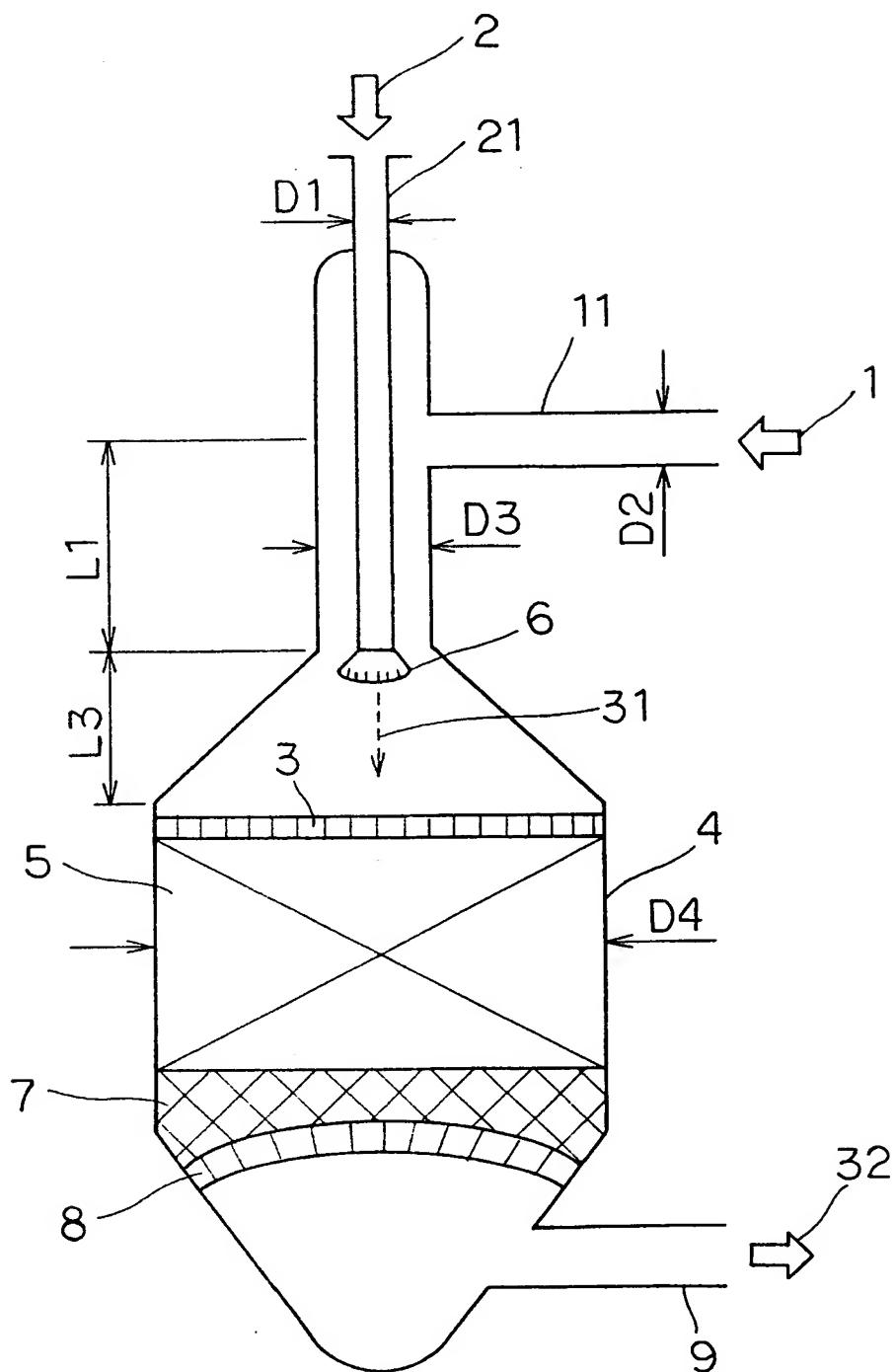


(d)



(e)

【図4】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 簡単な構造のバーナを用いつつも、バーナや触媒の熱損傷や高温腐食損傷を防ぐことのできる、長寿命な改質器、また触媒層内で起きる反応の反応効率を高く維持できる改質器を提供する。

【解決手段】 含炭素原料を部分酸化した後に水蒸気改質して合成ガスを得るための、密閉可能な容器と、該容器内に酸化剤を供給するための酸化剤供給管と、該容器内に含炭素原料を供給する含炭素原料供給管とを備える改質器において、酸化剤供給管の中心軸と含炭素原料供給管の中心軸とが、該酸化剤供給管出口より酸化剤流れ方向下流かつ該含炭素原料供給管出口より含炭素原料流れ方向下流において交わることを特徴とする。

【選択図】 図 1

特願 2002-236447

出願人履歴情報

識別番号 [000222174]

1. 変更年月日 1990年 8月 7日

[変更理由] 新規登録

住 所 東京都千代田区霞が関3丁目2番5号  
氏 名 東洋エンジニアリング株式会社